## (19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出職公開番号

特開平6-306084

(Si)IntCL<sup>1</sup> 離別記号 庁内整理書号 F I 技術表示箇所 C O 7 F 7/08 S 8018-4H 7/21 8018-4H C O 8 L 83/04 S8/06 L R Z 819-4 J

審査請求 未請求 請求項の数1 FD (全 15 頁)

(21)出職番号	<b>特顯平5-123581</b>	(71)出職人	000002060		
			信越化学工業株式会社		
(22)出版日	平成5年(1993)4月27日		東京都千代田区大手町二丁目6番1号		
		(72)発明者	塩原 利夫		
		群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10			
			信整化学工業株式会社シリコーン電子材料 技術研究所内		
		(72)発明者	二ツ森 浩二		
			群馬県確水郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社シリコーン電子材料		
			技術研究所内		
		(74)代理人	弁理士 小島 隆司		

## (54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物

(57) 【要約】

【構成】 下記一般式 (1) で示されるエポキシ変性シャ R.R's S i O(+(++))/2

(但し、Rは1価の炭化水素基、R<sup>1</sup>は芳香環及びエポ キシ基をそれぞれ含有する有機基であって、1分子中に※

R、R・R・S・L (0・(・・・・)) / (但し、Rは1値の炭化水素基、R・は酸無水物基、フェノール性水酸基又は下き、基色の水積基であって、1分子中に少なくとも2個以上のR・基を有し、0くとく3、0くdく3、0くc+dく4である。) (例果) 本売明に係る変性シリコーンを主体とする樹脂積格を持つエボキシ樹脂組成物は、相溶性が身好なた

\*リコーンと硬化剤として下記一般式 (2) で示される変 性シリコーンよりなるエポキシ樹脂組成物。 … (1)

最終百に継く

※少なくとも2個以上のエポキシ基を有し、0<a<3、 0<b<3、0<a+b<4である。)</p>

め透明で均一な硬化物を得ることができ、酸焦水物の輝 数による硬化不良がなく、窓温でも十分に軟らかいた め、応力特性に優れたものである。また、無機買充填剤 を配合することにより、更に強靭な硬化物を得ることが できる。

## 【特許請求の範囲】

1 【糖求項1】 下記一般式(1)で示されるエポキシ変\* R. R. S I O(4-(4+8))/2

(但1. Rは1価の遊化水業基、RIは芳香環及びエポ キシ基をそれぞれ含有する有機基であって、1分子中に※

R. R2 S 1 O(4-(4+4))/2

(但し、Rは1価の炭化水素基、R\*は酸無水物基、フ ェノール性水酸基又はアミノ基含有の有機基であって、 1分子中に少なくとも2個以上のR<sup>2</sup>基を有し、0 < c < 3. 0 < d < 3. 0 < c + d < 4 c & 5 6. ) 【発明の詳細な説明】

[0001]

[産業上の利用分野] 本発明は、華護硬化性に優れ、耐 クラック性、耐溶剤性に優れた硬化物を与えるエポキシ 樹脂組成物に関する。

[0002]

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】最近で は、半導体素子の封止も従来の固形樹脂によるトランス ファー成形から、液状樹脂によるベアチップの封止に変 わりつつある。

【0003】現在市販されている液状封止材としてはエ ピピスタイプのエポキシ樹脂を酵無水物で硬化させるも のが大部分であるが、この種のエポキシ樹脂組成物は硬 くて喰いため容易にクラックが入ってしまい、高信頼性 の単準体デバイスを複状樹脂で封止して製造することが 困難である。

【0004】一方、イメージセンサーなどの透明封止材 としては透明なゴム状のシリコーンが使用されている が、表面硬度が無いため、ゴム表面をガラス板で覆って 明なエポキシ樹脂での封止も検討されているが、この方 法は、温度サイクルでの応力によるセンサー部での樹脂★

R. RI. S 1 O(4-(4+b)1/2 R. R. S 1 O(4-(++1))/2

(但し、Rは1価の炭化水素基、R1は芳香環及びエボ キシ基をそれぞれ含有する有機基であって、1分子中に☆

(但し、Rは1価の炭化水素基、R<sup>2</sup>は酸無水物基、フ ェノール件水酔基マはアミノ基合有の有機基であって、 1分子中に少なくとも2個以上のR2基を有し、0 < c <3.0<d<3、0<c+d<4である。)</p>

【0008】即ち、エポキシ変性シリコーンとしてはア リルグリシジルエーテルをヒドロキシシリル基合有のシ リコーンに付加したものが現在では容易に入手可能であ るが、この化合物は従来公知のエピピス型のエポキシ樹 脂やノボラック型エボキシ樹脂に相溶しないため白濁し たり相分離して光学用途に使用できないばかりか、硬化 反応中にシリコーンが滲み出すという問題がある。また 硬化材として酸無水物を用いた場合、薄膜で硬化させよ うとすると酸無水物が容易に揮散して硬化不良となった り、表面部分が未硬化となってしまうという問題点もあ 50

\*性シリコーンと硬化剤として下記一般式(2)で示され る変性シリコーンよりなるエポキシ樹脂組成物。

... (1)

※少なくとも2個以上のエポキシ基を有し、0<a<3、 0<b<3, 0<a+b<4である。)

... (2)

★剥離や樹脂クラック、あるいは高温で変色し易いという な占があり、まだ事用化には至っていない。また、LE Dなども市販の透明なエポキシ樹脂で封止されている

10 が、硬化時に発生する応力や低温での樹脂収縮応力で輝 度が変化してしまう。

【0005】本発明は上記事情に鑑みなされたもので、

各種電子部品の封止に有効に使用され、優れた薄膜硬化 性を有すると共に、耐クラック性、耐溶剤性に優れた硬 化物を与え、また良好な透明性を与えることが可能な工 ポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。

[0006]

【課題を解決するための手段及び作用】本発明者らは、 上記目的を達成するため鋭意検討を進めた結果、下記ー 20 粉式 (1) で示されるエポキシ変件シリコーンと硬化剤 として下記一般式 (2) で示される変性シリコーンとを 併用することにより、従来硬さ、脆さが指摘されていた エポキシ樹脂硬化物を柔軟化させて、低応力化すること ができ、また従来エポキシ樹脂にシリコーン成分を添加 するとミクロ相分離を起こし、硬化物の白濁が発生した が、シリコーン骨格にエポキシ樹脂又は硬化剤成分を導 入することで透明性を持たせることができ、しかも従来 の酸無水物硬化剤は加熱硬化時に揮散し、硬化不良や薄 膜硬化性を低下させていたが、酸無水物変性シリコーン いる。この場合、コスト削減のため、市販されている透 30 を使用することにより、かかる問題が解決できることを 知見した。

[0007]

☆少なくとも2個以上のエポキシ基を有し、0<a<3、</p>

... (1) 0<b<3、0<a+b<4である。)

るが、本発明の式(1),(2)の変性シリコーンを併 用したエポキシ機能組成物を用いることで、透明性、応 力特性に優れ、また菩膜硬化性に優れたエポキシ硬化物 40 が得られることを見い出したものである。

[0009] 従って、本発明は、上紀一般式(1)で示 されるエポキシ変性シリコーンと硬化剤として上配一般 式 (2) で示される変性シリコーンよりなるエポキシ樹 脂組成物を提供する。

【0010】以下、本発明について更に詳細に説明す る。本発明のエポキシ樹脂組成物においては、エポキシ 横脂成分として下記式 (1) で示される線状、環状又は 三次元構造のエポキシ変性シリコーンを使用する。

[0011]

R. R. S i O(4-(4+b))/2

(但し、Rは1価の炭化水素基、R1は芳香環及びエポキシ基をそれぞれ含有する有機基であって、1分子中に少なくとも2個以上のエポキシ基を有し、0<a<3、0<b<3、0<a+b<4である。)

[0012] ここで、Rは1値の映化水業基であり、具体的には映業数 1~10の置換又は非置換のアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示す。また、R<sup>1</sup>は 芳香環及びエボキシ基合有の有機基であり、具体的には下配のものが挙げられる。

[0013]

(1£1) -(O)-0\sqrt{0}

2000 A

R R R R RSiO-(SiO)<del>--(</del>SiO)<del>--</del>SiR

R R<sup>1</sup>
(SiO)<sub>2</sub> (SiO)<sub>4</sub>
R R

(式中、R, R<sup>1</sup>は上配と同様の意味を示し、R<sup>3</sup>はR又はR<sup>1</sup>であり、0 < n + m < 1000、3 40 である。)

【0016】 このようなエポキシ変性シリコーンとして 具体的には下配のものを例示することができる。

[0017]

[化3]

... (1)

(但し、Meはメチル基を示す。) 【0014】上記エポキシ変性シリコーンとしては、特に下記さ(10) (15) オラマヤンを持ちて持事性の

に下記式(1a), (1b)で示される線状又は環状の ものが低応力化や組成物の低粘度化の点から好適であ る。

[0015]

(化2)

116.2

10

··· (la)

... (1b)

40 【化5】

[0019]

(但し、Meはメチル基、Prはn-プロビル基を示 す。)

【0020】これらエポキシ変件シリコーンは従来公知 のエポキシ樹脂と併用して使用してもよく、特に高温で の強度を保持するためには併用することが推奨される。 この場合、エポキシ樹脂としてはエピピスタイプのエポ 20 【0022】 キシ繊胞、フェノールノボラックやクレゾールノボラッキ

R. R2 S 1 O(4-(4+4))/2

(但し、Rは1価の炭化水素基、R2は酸無水物基、フ エノール性水酸基又はアミノ基含有の有機基であって、 1分子中に少なくとも2個以上のR<sup>2</sup>基を有し、0 < c <3、0<d<3、0<c+d<4である。)

[0023] ここで、Rは上記式 (1) で説明したもの

\*ク型エポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹 胎、ピフェニル型エポキシ樹脂、ナフタレン環含有のエ ポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂等が挙げられ、これら の1種又は2種以上を使用することができる。これらエ ポキシ樹脂を併用する場合、その割合は全エポキシ樹脂 の10~90重量%、より好ましくは40~80重量% である。90重量%を超えると十分な低応力性が得られ なくなり、10重量%未満では強度向上に十分効果がな い場合が生じる。これらエポキシ樹脂の中でも被状のエ 10 ボキシ樹脂組成物とする場合はエピピスタイプのエボキ シ樹脂や脂環式のエポキシ樹脂が望ましい。また、粘度 を著しく下げたいような場合、フェニルグリシジルエー テルのような希釈剤を適宜選択して使用することもでき

【0021】本発明のエポキシ樹脂組成物は、硬化剤と して下配一般式 (2) で示される線状、環状又は三次元 構造のエポキシ変性シリコーンを使用する。これらの変 性シリコーン硬化剤を使用することで低応力性をはじめ として従来得られなかった特性を得ることができる。

... (2)

と同様であり、また、R<sup>2</sup>は酸無水物基、フェノール性 水酸基又はアミノ基含有の有機基であり、具体的には下 配のものが例示される。

[0024] [4k.6]

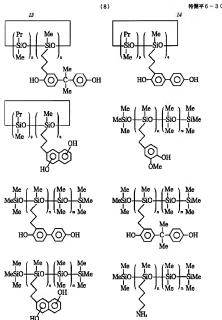
[0025] 上記式(2) の変性シリコーンとしては、 特に下記式 (2 a), (2 b) で示されるものが好達で ある。

··· (2b)

(式中、R, R<sup>2</sup>は上記と同様の意味を示し、R<sup>4</sup>はR又 である。) はR<sup>2</sup>であり、0 <m+n <1000、3 <p+q <7 50 【0027】このような変性シリコーンとして具体的に 11 は下記のものを例示することができる。 【0028】

\*【化8】

[0029]



[0030]

化10]

(但し、Meはメチル基、Prはn-プロピル基を示す。)

[0031] ごれら硬化剤としての変性シリコーンは従来公和の硬化剤を併用して使用してもよい。かかる硬化 利としてはフェノール機能。アトラヒドロ無メアクル機 などの定果より公和の酸熱気物。アミン化合物等が挙げ られる。これら硬化剤を併用する場合、その割合は全型 低剤の10~90重量%、より好ましくは40~80重 無メである。90重量%を耐えると十分な低水力性が得 られなくなり、10重量%未満では増加した効果がな 場合が生じる。これら硬化剤の中でも、液状のエポキン機能組成物とする場合は産業水物タイプの硬化剤が延 ましい。また、こに挙げたような硬化剤は2種類以上 を併用して使用してもよい。

【0032】本発明の組成物において、エポキシ基と硬化剤との当量比はエポキシ基1に対し0.5~2、望ましくは0.9~1.5の範囲である。

[0033] また、エボキシ基と硬化剤の反応を迅速に 行うために、リン化合物、アミン酵毒体、シクロアミジ ン類、イミダゾール酵毒体等の硬化促進剤を用いること が留ましい。

[0034] これらの硬化促進剤の使用量は、エポキシ 機能と硬化剤の合計量100重量部当り0.05重量部 40 から10重量部が望ましい。0.05重量部未満 ウム硬化促進作用が得られない場合があり、10重量部 を超えると十分な可能時間が得られない場合がある。

[0039] 本界明の組成物には、必要により無機環充 境別を使用することができる。無機費充填削は樹脂組成 物の整張頻をかさくし、半導体素子等のインサート物 に加わる応力を低下させるためのものである。具体例と しては、破砕状、準状の形状を持った溶離シリカ、結晶 セシリカが主に用いられる。この場合、硬化物の低塵器 化と作業核を預立させるためには微状と破容品のブレン の を採用することができる。

ド、あるいは地状品のみを用いた方がよい。また、無線 質丸域剤としては、この他にアルミナ、整化ケイ素、整 化アルミ、設限力がよりな、が用ン ナイトライド、ガラス酸熱、ケイ酸カリンウムなども必 用可能である。たね、この種の無質方生剤ださせら ランカップリング剤で表面処理して使用することができ る。また、二級タイプのシリコーンゴムキシリコーング ルケ機能質性が表面を使用してもよい。

[0036] 無機質が成利の平均粒径としては5~20 タクロンのものが好ましい。また、無機質が集列の光域 重はエボキン機能と硬化剤の合計量 100重量部化対し 50~800重量部が学まして、50重量形式対し 製術度が大きたり、半線体系手に加わる広かが大 し、第子特性の劣化を招く場合が生じ、また800重量 能を組入ると組成物の純皮が高くなり、浅動性の低下の ため作業が必須くなる場合が生じ。

[0037] 本祭明には、更に本発明のエポキン糖情報 成物の硬化物に可能性や強勢性を付与するため、各種名 機合成ゴム、メタクリル酸メチルーステレンープタシエ ン共富合体、スチレン・エチレン・プテン・スチレン共 富合体とごの熱可能性質師、シリコーンゲルやシリコー ンゴムなどの機動末を縦向することができる。

[0038]また、本発明の組成物には、必要に応じ、 カルナパワックス、高級脂肪酸、合成ワックス類などの 離型刺、更にシランカップリング刺、酸化アンチモン、 リン化合物などを配合してもよい。

[0039] 本発明の組成物は、上配成分を混合することにより製造することができ、またこの組成物を成形する場合はポッティング、キャスティングなどの成形方法を提用することができる。更に、硬化条件としては80~100℃で1~2時間程度硬化させるステップキュア方式本程即セスニとができる。

[0040]

【発明の効果】本発明に係る変性シリコーンを主体とす る樹脂骨格を持つエポキシ樹脂組成物は、相溶性が良好 なため透明で均一な硬化物を得ることができ、確無水物 の揮散による硬化不良がなく、室温でも十分に軟らかい ため、応力特性に優れたものである。また、無機質充填 剤を配合することにより、更に強靭な硬化物を得ること

17

【0041】このため、本発明のエポキシ樹脂組成物は ラインセンサー、エリアセンサー、イメージセンサーな 10 どの透明性を要求される液状封止材の用途に好適であ り、無機質充填剤を含有させたものは更に低応力となる ため各種の高信頼性半導体デバイスの封止に好適であ

[0042]

\*【実施例】以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具 体的に説明するが、本発明は下配の実施例に制限される ものではない。なお、実施例、比較例の説明に先立ち、 各例で用いた変性シリコーンの製造例を示す。

[0043] [製造例1] 還流冷却器、温度計及び滴下 ロートを具備した四つロフラスコに、4-アリル-3-メトキシグリシジルフェニルエーテル52.9g(0. 24モル)、トルエン300g及び塩化白金酸のトルエ ン溶液 (白金含有量1.5重量%) 0.3 gを仕込み、 112℃に加熱しながらこれに下配式 (a) の有機珪素 化合物33.4g(0.04モル)を約30分間で満下 した。滴下終了後、還流温度で3時間反応を行わせた。 [0044]

[化11]

$$\begin{array}{c} Me\\ Me-Si\\ Me\\ \end{array} \\ \begin{array}{c} Me\\ OSi\\ H\\ \end{array} \\ \begin{array}{c} Me\\ OSi\\ Me\\ \end{array} \\ \begin{array}{c} Me\\ OSi\\ Me\\ \end{array} \\ \begin{array}{c} Me\\ OSi-N\\ Me\\ \end{array}$$

反応後、低留分を留去したところ、生成物64.1g 20%た。

(収率83%) が得られた。この生成物についてNM [0045] 化121 R、IR、元素分析を測定したところ、下配の構造式

(I)を有する有機珪素化合物であることが確認され※

Мe

... (1)

··· (a)

【0046】〔製造例2〕製造例1で使用した四つロフ ラスコ中で、4-アリル-3-メトキシグリシジルフェ ニルエーテル68.7g(0.31モル)、トルエン2 50g及び塩化白金酸のトルエン溶液(白金含有量0. 5重量%) 0. 3 gを仕込み、1 1 2 ℃に加熱しながら★

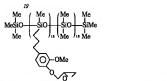
★これに下記式(b)の有機珪素化合物38.2g(0. 02モル)を約30分間で滴下した。滴下終了後、還流 温度で3時間反応を行わせた。 [0047]

【化13】

··· (b)

反応後、低留分を留去したところ、生成物88.1g (収率92%) が得られた。この生成物についてNM R、IR、元素分析を測定したところ、下配の構造式 (II) を有する有機珪素化合物であることが確認され た. [0048] (R141

··· (II)



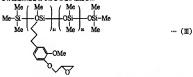
[0049] (製造例3) 製造例1で使用した四つロフ 10\*れに下記式(c)の有機珪素化合物39.6g(0.0 ラスコに、4-アリル-3-メトキシグリシジルフェニ ルエーテル66.1g(0.30モル)、トルエン25 0 g 及び塩化白金酸のトルエン溶液(白金含有量0.5

1モル)を約30分間で滴下した。滴下終了後、還流温 度で3時間反応を行わせた。 [0050]

··· (c)

重量%) 0. 3gを仕込み、112℃に加熱しながらこ\* 【化15】

反応後、低留分を留去したところ、生成物80、0g ※れた。 (収率84,5%) が得られた。この生成物についてN 20 [0051] MR、IR、元素分析を測定したところ、下記の構造式 化161 (III) を有する有機珪素化合物であることが確認さ※

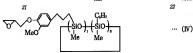


[0052] (製造例4)製造例1で使用した四つロフ ラスコに、4-アリル-3-メトキシグリシジルフェニ ルエーテル29.1g(0.13モル)、トルエン20 0 g 及び塩化白金融のトルエン溶液(白金含有量0.5 重量%) 0. 1gを仕込み、112℃に加熱しながらこ★ ★れに下記式 (d) の有機珪素化合物40.3gを約30 分間で滴下した。滴下終了後、還流温度で3時間反応を 行わせた。 [0053]

[4:17]

··· (d)

反応後、低個分を留去したところ、生成物61.7g (収率96%) が得られた。この生成物についてNM R、IR、元素分析を測定したところ、下記の構造式 (IV) を有する有機球素化合物であることが確認され [0054] 【化18】



【0055】 (製造例5) 製造例1で使用した四つロフ ラスコに、4-アリル-3-メトキシグリシジルフェニ ルエーテル63.4g(0.29モル)、トルエン25

0g及び塩化白金酸のトルエン溶液(白金含有量0.5 10 【0056】 重量%) 0. 3gを仕込み、112℃に加熱しながらこ\*

\*れに下配式 (e) の有機珪素化合物14.4g(0.0 6モル)を約30分間で滴下した。滴下終了後、還流温 度で3時間反応を行わせた。

(化191

**※た。** 

··· (e)

反応後、低留分を留去したところ、生成物60.0g (収率89%) が得られた。この生成物についてNM R、TR、元素分析を測定したところ、下配の構造式 (V) を有する有機珪素化合物であることが確認され※20

[0057] [4:20]

··· (V)

【0058】 (製造例6) 製造例1で使用した四つロフ ラスコに、無水アリルナジック酸81、5g(0、40 モル)、トルエン300g及び塩化白金酸のトルエン溶 液(白金含有量0.5重量%)0.3gを仕込み、11 30 された。 2℃に加熱しながらこれに上記式 (e) の有機珠素化合 物14.8g(0.06モル)を約30分間で満下し た。滴下終了後、低留分を留去したところ、生成物6 ★

★9. 8g (収率72%) が得られた。この生成物につい てNMR、IR、元素分析を測定したところ、下記の構 浩式 (VI) を有する有機非素化合物であることが確認

[0059]

[4:2 1]

... (VI)

ラスコに、無水アリルナジック酸54g(0.53モ ル)、トルエン250g及び塩化白金酸のトルエン溶液 (白金含有量0.5重量%) 0.4 gを仕込み、112 ℃に加熱しながらこれに下記式(f)の有機珪素化合物 25.9g(0.16モル)を約30分間で滴下した。 摘下終了後、低留分を留去したところ、生成物71g

【0060】 (製造例7) 製造例1で使用した四つロフ 40 (収率87%) が得られた。この生成物についてNM R、IR、元素分析を測定したところ、下記の構造式 (VII) を有する有機珪素化合物であることが確認さ れた。

> [0061] (化221

··· (f)

[0062]

【0063】 (製造例8) 製造例1で使用した四つロフ ラスコに、4-アリル-3-メトキシグリシジルフェニ ルエーテル66.8g(0.41モル)、トルエン15 0g及び塩化白金酸のトルエン溶液(白金含有量0.5 重量%) 0. 48gを仕込み、112℃に加熱しながら これに上記式 (f) の有機珪素化合物60g(0,19 モル)を約30分間で満下した。満下終了後、低留分を※20

得られた。この生成物についてNMR、IR、元素分析 を測定したところ、下記の構造式 (VIII) を有する 有機珪素化合物であることが確認された。 [0064] [化24]

※留夫したところ、生成物116.4g(収率96%)が

··· (VII)

【0.0.6.5】 (家施報1~1.2、比較報1.2) 上記製 告例で得られた変性シリコーン、及びエポキシ樹脂とし てピスフェノールA型エポキシ樹脂(商品名RE31 0、室温で液状、日本化薬社製)、酸無水物硬化剤とし てメチルヘキサヒドロ無水フタル酸 (商品名MH70) 0、室温で被状、新日本理化社製)、硬化促進剤として 1-メチル-2-エチルイミダゾール (商品名キュアゾ ール1M2WZ、氧温で液状、四国化成工業社製)、シ リカ系無機質充填剤(商品名FB35、平均粒径10. 3 µm、電気化学工業社製)をそれぞれ表に示す量で使 用し、ゲートミキサーを用いて混合した。

【0066】混合後、それぞれの組成物について次に示 されるような試験を行い、その特性を評価した。結果を 表に示す。

(1) ゲル化時間

組成物のゲル化時間を150℃で測定した。

(2) 表面硬度

組成物をアルミシャーレに厚さ3mmとなるように入 れ、100℃で1時間前硬化させた後、150℃で4時 間硬化させた。その硬化物の表面硬度をパーコール硬度 50 【表1】

計 (GYZ935) で測定した。

(3) 耐溶剤性

表面硬度を測定した硬化物をアセトン中に20時間室温 で放置し耐溶剤性を調べた。

〇: 変化なし、〇: 表面部影響、×: 溶解 (4) 薄膜硬化性

組成物をガラス板上に50ミクロンの厚みにスクリーン 印刷した後、100℃で1時間、150℃で4時間硬化 させた。この試験片をアセトン中に4時間放置し、その 表面状態を観察した。

②:変化なし、〇:表面部膨稠、×:溶解

(5) 耐クラック性

アルミシャーレ中に直径3cm程度のナツトを置き、こ れに組成物を注型した後、100℃で1時間、150℃ で4時間の硬化を行った。硬化サンプルを直接150℃ の炉から取り出し、−70℃のドライアイス−メタノー ル中に浸漬しクラックの発生状況を観察した。試験サン プル5個中でクラックの入ったサンプル数を示した。 [0067]

(14)

特別平6-306084

25 26 実 施 例 比較例 1 2 3 4 5 6 7 8 1 式 (I) の化合物 46.9 56.0 52.2 " (II) " (II) 60.0 " (IV) 38.6 69.5 46.8 49.8 " (V) " 30.5 47.8 40.0 53.2 " (VI) " " (VII) 53.1 61.4 44.0 50.2 " (VIII) ビスフェノールA型 エ ポ キ シ 樹 脂 53.7 メチルヘキサヒドロ 無 水 フ タ ル 酸 48.3 1-メチル-2-エチ ルイミダゾール 0.1 0.1 0.1 0.1 0.1 0.1 0.1 0.1 0.1 シリカ系無機管充填剤 ゲル化時間 133 141 145 127 125 103 | 130 | 109 120 表 面 硬 度 68 76 15 80 78 78 72 74 97 割 性 0 0 0 0 0 0 0 0 × 弊 0 0 0 0 0 0 薄膜硬化性 0 0 x

[0068] [表2]

耐クラック性

0 0 0 1 0 0 0 0 5

27					28
	킞	実 施 例			比較例
	9	10	11	12	2
式 (I) の化合物					
" (II) "			52.2		
" (II) "					
" (IV) "	49.6	69.5		49.6	
" (V) "					
" (VI) "	20.4	30.5	47.8	20.4	
" (VII) "					
" (MII) "					
ピスフェノールA型 エ ポ キ シ 樹 脂	16.1			16.1	53.7
メチルヘキサヒドロ 無 水 フ タ ル 酸	13.9			13.9	46.3
1-メチル-2-エチ ルイミダゾール	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
シリカ系無機質充填剤		100	100	100	100
ゲル化時間	119	143	128	120	118
表面硬度	82	89	92	98	-
耐溶剤性	0	0	0	0	×
薄 膜 硬 化 性	0	0	0	0	×
耐クラック性	1	0	0	0	3

【0069】実施例1~9の無機質充填剤を含有しない タイプの硬化物はいずれも淡黄色透明又は淡褐色透明で あり、相溶性に優れた均一なものであった。

フロントページの練き

(72)発明者 新井 一弘

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社シリコーン電子材料 技術研究所内 (72)発明者 土橋 和夫

・土橋 和夫 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社シリコーン電子材料 技術研究所内

(72)発明者 若尾 幸

群馬県碓氷那松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社シリコーン電子材料 技術研究所内